

534, 115

## BEST AVAILABLE COPY

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2004 年 6 月 17 日 (17.06.2004)

PCT

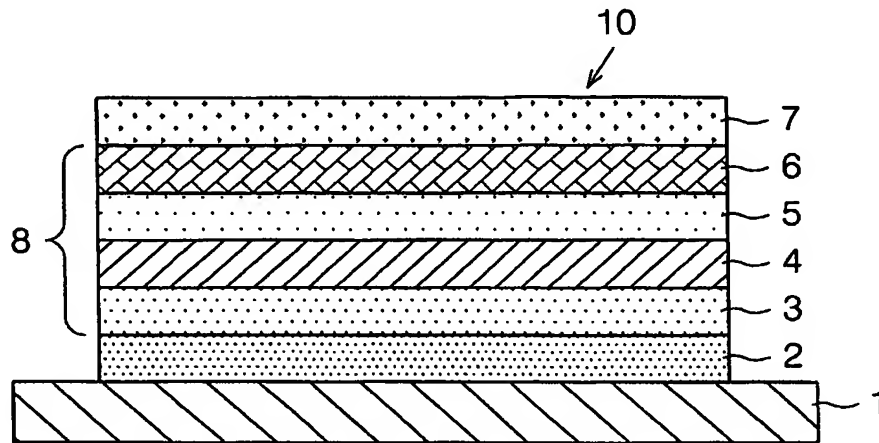
(10) 国際公開番号  
WO 2004/052057 A1

- (51) 国際特許分類: H05B 33/22, 33/14, C09K 11/06  
(21) 国際出願番号: PCT/JP2003/014108  
(22) 国際出願日: 2003 年 11 月 5 日 (05.11.2003)  
(25) 国際出願の言語: 日本語  
(26) 国際公開の言語: 日本語  
(30) 優先権データ: 特願2002-322773 2002 年 11 月 6 日 (06.11.2002) JP  
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社 豊田自動織機 (KABUSHIKI KAISHA TOYOTA JIDOSHOKKI) [JP/JP]; 〒448-8671 愛知県 刈谷市 豊田町 2 丁目 1 番地 Aichi (JP).  
(71) 出願人 (日本, 韓国についてのみ): チッソ 株式会社 (CHISSO CORPORATION) [JP/JP]; 〒530-0005 大阪府 大阪市 北区中之島 3 丁目 6 番 3 2 号 Osaka (JP).  
(72) 発明者; および  
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 長柄 良明 (NAGARA, Yoshiaki) [JP/JP]; 〒448-8671 愛知県 刈谷市 豊田町 2 丁目 1 番地 株式会社 豊田自動織機 内 Aichi (JP). 村崎 孝則 (MURASAKI, Takanori) [JP/JP]; 〒448-8671 愛知県 刈谷市 豊田町 2 丁目 1 番地 株式会社 豊田自動織機 内 Aichi (JP). 山本 一郎 (YAMAMOTO, Ichiro) [JP/JP]; 〒448-8671 愛知県 刈谷市 豊田町 2 丁目 1 番地 株式会社 豊田自動織機 内 Aichi (JP).  
(74) 代理人: 恩田 博宣 (ONDA, Hironori); 〒500-8731 岐阜県 岐阜市 大宮町 2 丁目 1 2 番地の 1 Gifu (JP).  
(81) 指定国 (国内): JP, KR, US.  
(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).

[続葉有]

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE

(54) 発明の名称: 有機電界発光素子



(57) Abstract: An organic EL device comprises an electron transporting layer which contains at least a first organic compound and a second organic compound. The first organic compound has an electron mobility higher than that of the second organic compound. The second organic compound has a glass transition temperature higher than that of the first organic compound. Consequently, the organic EL has a long life and a high luminous efficiency. The first organic compound is preferably a silole derivative and the second organic compound is preferably a quinolinolato metal complex.

(57) 要約: 本発明の有機EL素子が備える電子輸送層は、第一の有機化合物及び第二の有機化合物を少なくとも含有する。第一の有機化合物は、第二の有機化合物の電子移動度よりも高い電子移動度を有し、第二の有機化合物は、第一の有機化合物のガラス転移温度よりも高いガラス転移温度を有する。そのため、本発明の有機EL素子は、長い寿命及び高い発光効率を有する。第一の有機化合物は好ましくはシロール誘導体であり、第二の有機化合物は好ましくはキノリノラト系金属錯体である。

WO 2004/052057 A1



添付公開書類:

— 国際調査報告書

— 請求の範囲の補正の期限前の公開であり、補正書受領の際には再公開される。

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

## 明細書

## 有機電界発光素子

## 5 技術分野

本発明は有機電界発光素子（有機EL素子）に関する。

## 背景技術

有機EL素子は、次世代ディスプレイ用の素子として注目されている。一般的  
10 的な有機EL素子では、ガラス基板の上にインジウムスズ酸化物（ITO）等の透  
明導電材料からなる陽極が設けられ、その陽極の上にホール注入層、ホール輸送  
層、発光層、電子輸送層及び陰極が順番に設けられている。陽極と陰極との間に  
直流電圧が印加されると、陽極からホール注入層へはホールが注入され、陰極か  
15 ら電子輸送層へは電子が注入される。注入されたホールはホール輸送層を介して  
発光層まで輸送され、注入された電子もまた発光層まで輸送される。そして、発  
光層においてホールと電子とが再結合し、その結果光が発せられる。

近年、有機EL素子は長寿命であることを望まれている。有機EL素子の寿命  
を示す指標として初期輝度半減期が知られている。初期輝度半減期とは、有機EL  
20 素子の輝度が初期輝度の半分にまで低下するのに要する時間であり、この半減  
期が長いほど有機EL素子の寿命は長いとみなされる。

初期輝度半減期を短くする主な原因としては、例えば、電流注入によって発生  
する熱あるいは経時変化による有機EL素子中の有機化合物の結晶化、有機化合  
25 物の酸化分解及び還元分解のような電気化学的な分解、有機化合物の化学的な分  
解、有機化合物の凝集、隣接する層同士の間での剥離、隣接する層同士の間での錯  
体形成が挙げられる。

一方、キノリノラト系金属錯体、とりわけAlq<sub>3</sub>と略されるトリスー（8-

キノリノラト) アルミニウム、あるいはBA1qと略されるビス(2-メチルー  
8-キノリノラト)(p-フェニルフェノラト)アルミニウムからなる電子輸送層  
を備えた有機EL素子は、比較的長い初期輝度半減期を有することが知られてい  
る。しかしその反面、Alq<sub>3</sub>又はBA1qからなる電子輸送層の電子移動度は  
5 あまり高くない。そのため、Alq<sub>3</sub>又はBA1qからなる電子輸送層を備えた  
有機EL素子の発光効率はあまり高くない。

なお、電子輸送層を形成するその他の材料としては、特開平09-87616  
号公報、特開平09-194487号公報及び特開2002-100479号公  
10 報に開示されるものが知られている。

#### 発明の開示

本発明の目的は、長寿命で尚かつ発光効率の高い有機EL素子を提供すること  
にある。

15

上記の目的を達成するために、本発明の一態様では、以下の有機EL素子が提  
供される。その有機EL素子は、一对の電極と、その一对の電極の間に設けられ  
た電子輸送層を含む複数の有機化合物含有層とを備える。電子輸送層は、第一の  
有機化合物及び第二の有機化合物を少なくとも含有する。第一の有機化合物は、  
20 第二の有機化合物の電子移動度よりも高い電子移動度を有する。第二の有機化  
合物は、第一の有機化合物のガラス転移温度よりも高いガラス転移温度を有する。

本発明の別の態様では、以下の有機EL素子が提供される。その有機EL素子  
は、一对の電極と、その一对の電極の間に設けられた電子輸送層を含む複数の有  
25 機化合物含有層とを備える。電子輸送層は、第一の有機化合物及び第二の有機化  
合物を少なくとも含有する。第一の有機化合物は、第二の有機化合物の電子移動  
度よりも高い電子移動度を有する。電子輸送層が第一の有機化合物のみから形成  
される有機EL素子を第一の有機EL素子とし、電子輸送層が第二の有機化合物  
のみから形成される有機EL素子を第二の有機EL素子とした場合、第二の有機

EL素子の初期輝度半減期が第一の有機EL素子の初期輝度半減期よりも長くなるように第一及び第二の有機化合物は選択されている。

#### 図面の簡単な説明

- 5 図1は、本発明の一実施形態に係る有機EL素子の断面図である。

#### 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明の一実施形態を図1に基づいて説明する。

- 10 図1に示すように、本実施形態に係る有機EL素子10は、基板1と、基板1の上に設けられた陽極2と、陽極2の上に設けられた有機層8と、有機層8の上に設けられた陰極7とを備える。有機層8は、有機化合物含有層としての、ホール注入層3、ホール輸送層4、発光層5及び電子輸送層6を含む。これらの層3～6は、陽極2と対向する有機層8の側面から陰極7と対向する有機層8の側面  
15 に向かって順番に並んでいる。

- ホール注入層3及びホール輸送層4は必ずしも必要でなく省かれてもよい。ただし、有機層8がホール注入層3及びホール輸送層4を含むことによって、有機EL素子10の発光効率は向上し、有機EL素子10の初期輝度半減期は延長す  
20 る。

- 基板1は、有機EL素子10において支持体として機能する。基板1は、ガラス板、プラスチックシート、プラスチックフィルム、金属板又は金属箔であってもよいし、あるいはシリコン等のセラミックから形成されてもよい。防湿性、耐  
25 衝撃性、耐熱性及び表面平滑性に優れることから、基板1はポリエチレンテレフタレート、ポリカーボネート又はポリメタクリレートから形成されることが好ましい。防湿性を向上させるべく、基板1の表面にはシリコン窒化膜、シリコン酸化膜又はシリコン酸化窒化膜が設けられてもよい。ただし、発光層5から発せられる光（可視光）が基板1を通じて有機EL素子10から出射される場合には、

基板 1 は可視光を透過可能である必要がある。

陽極 2 は、ホール注入層 3 にホールを注入する役割を有する。陽極 2 を形成する材料は、金属、合金、電気伝導性化合物及びそれらの混合物のいずれであつてもよいが、低い電気抵抗及び大きい仕事関数を有することが望ましい。陽極 2 を形成する好ましい材料の例としては、ITO、酸化スズ、酸化亜鉛、酸化亜鉛と酸化インジウムとの混合物、窒化チタン等の金属酸化物及び金属窒化物；金、白金、銀、銅、アルミニウム、ニッケル、鉛、クロム、モリブデン、タングステン、タンタル、ニオブ等の金属；ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロール、ポリフェニレンビニレン等の導電性高分子が挙げられる。陽極 2 は、単一種類の材料から形成されてもよいし、複数種類の材料から形成されてもよい。陽極 2 の厚みは、好ましくは  $10\text{ nm} \sim 1\text{ }\mu\text{ m}$  であり、より好ましくは  $10\text{ nm} \sim 300\text{ nm}$  である。陽極 2 は、スパッタリング法、イオンプレーティング法、真空蒸着法、スピコート法などの公知の方法によって形成される。発光層 5 から発せられる光（可視光）が陽極 2 を通じて有機 EL 素子 10 から出射される場合には、陽極 2 は可視光を透過可能である必要がある。可視光に対する陽極 2 の透過率は好ましくは 10% 以上である。

ホール注入層 3 は、陽極 2 から注入されるホールをホール輸送層 4 へ注入する役割と、陽極 2 と有機層 8 とを密着させる役割とを有する。ホール注入層 3 を形成する材料は、陽極 2 との高い密着性、低いイオン化ポテンシャル、及び高いガラス転移温度を有することが望ましい。ホール注入層 3 を形成する材料の例としては、フタロシアニン誘導体、ポルフィリン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、スターバーストアミン誘導体、ポリアニリン、及びポリチオフェンが挙げられる。好ましいフタロシアニン誘導体は銅フタロシアニン及び無金属フタロシアニンであり、好ましいスターバーストアミン誘導体は 4, 4', 4"-トリス（3-メチルフェニルフェニルアミン）トリフェニルアミンである。ホール注入層 3 は、単一種類の材料から形成されてもよいし、複数種類の材料から形成されてもよい。ホール注入層 3 の厚みは、好ましくは  $5\text{ nm} \sim 100\text{ nm}$  であり、より

好ましくは10nm～50nmである。ホール注入層3は、真空蒸着法、スピンコート法、ディップ法などの公知の方法によって形成される。

ホール輸送層4は、注入されたホールを発光層5へ輸送する役割を有する。ホール輸送層4を形成する材料は、ホール注入層3又は陽極2からホール注入されやすい性質を有すること、及び注入されたホールを発光層5へ効率よく輸送する能力を有することが望ましい。ホール輸送層4を形成する材料の例としては、トリアリールアミン誘導体、トリフェニルアミン構造を主鎖並びに／若しくは側鎖とする繰り返し構造を持つ化合物、トリフェニルメタン誘導体、ヒドラゾン誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、トリフェニルメタン誘導体、フルオレニルジフェニルアミン誘導体、ベンジジン誘導体、ピラゾリン誘導体、スチルベン誘導体、スチリルアミン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、カルバゾール誘導体、フェニレンジアミン誘導体、及びスピロ化合物のほか、ホール注入層3を形成する材料として先に例示した材料が挙げられる。好ましいトリアリールアミン誘導体はトリフェニルアミン及びトリフェニルアミンの2量体、3量体、4量体及び5量体であり、好ましいベンジジン誘導体は、N, N'-ジナフチル-N, N'-ジフェニルベンジジンであり、好ましいカルバゾール誘導体は4, 4'-N, N'-ジカルバゾールビフェニル及びポリ(N-ビニルカルバゾール)である。ホール輸送層4は単一種類の材料から形成されてもよいし、複数種類の材料から形成されてもよい。ホール輸送層4の厚みは、好ましくは5nm～100nm、より好ましくは10nm～50nmである。ホール輸送層4は、真空蒸着法、スピンコート法、ディップ法などの公知の方法によって形成される。

発光層5は、陽極2から注入及び輸送されたホールと陰極7から注入及び輸送された電子とが発光層5にて再結合することに基づいて光(可視光)を発する。ホールと電子とが再結合すると励起子が生成し、その励起子が基底状態に戻るときに光が発せられる。発光層5を形成する材料は、高い蛍光量子効率、ホールと電子を効率よく輸送する能力、及び高いガラス転移温度を有することが望ましい。

発光層 5 を形成する材料の例としては、ジスチリルアリレーン誘導体、ジスチリルベンゼン誘導体、ジスチリルアミン誘導体、キノリノラト系金属錯体、トリアリールアミン誘導体、アゾメチン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ピラゾロキノリン誘導体、シロール誘導体（シラシクロペンタジエン誘導体）、ナフタレン誘導体、アントラセン誘導体、ジカルバゾール誘導体、ペリレン誘導体、オリゴチオフェン誘導体、クマリン誘導体、ピレン誘導体、テトラフェニルプタジエン誘導体、ベンゾピラン誘導体、ユーロピウム錯体、ルブレン誘導体、キナクリドン誘導体、トリアゾール誘導体、ベンゾオキサゾール誘導体、及びベンゾチアゾール誘導体が挙げられる。好ましいキノリノラト系金属錯体は A1 q 3 及び B A 1 q であり、好ましいトリアリールアミン誘導体はトリフェニルアミンの 4 量体であり、好ましいジスチリルアリレーン誘導体は 4, 4'-ビス（2, 2'-ジフェニルビニル）ビフェニル（DPVBi）である。発光層 5 は、単一の層にて構成されてもよいし、複数の層にて構成されてもよい。発光層 5 はまた、単一種類の材料から形成されてもよいし、複数種類の材料から形成されてもよい。有機 EL 素子 10 の発光効率の向上及び初期輝度半減期の延長を目的に、発光層 5 は、ホスト化合物と、そのホスト化合物にドーパされたゲスト化合物とから構成されてもよい。ドーパされるゲスト化合物の濃度は、発光層 5 の全体にわたって均一であってもよいし、不均一であってもよい。発光層 5 の厚みは好ましくは 1 nm ~ 100 nm であり、より好ましくは 10 ~ 50 nm である。発光層 5 は真空蒸着法などの公知の方法によって形成される。

電子輸送層 6 は、陰極 7 から注入される電子を発光層 5 へ輸送する役割と、発光層 5 で生成する励起子が拡散して陰極 7 にて消光するのを防ぐ役割とを有する。電子輸送層 6 は、二種類の有機化合物すなわち第一及び第二の有機化合物から形成されるか、あるいはそれら二種類の有機化合物を主成分として含有している。第一及び第二の有機化合物は、陰極 7 から電子注入されやすい性質を有すること、及び注入された電子を効率よく輸送する能力を有することが望ましい。第一及び第二の有機化合物は、以下の要件 1 ~ 3 のうち要件 1 を含む少なくとも二つの要件を満たす。



要件 1 : 有機 EL 素子 10 の実際の使用時に印加される電界の強度の範囲内において、第一の有機化合物の電子移動度は第二の有機化合物の電子移動度よりも高い。

5 要件2：第二の有機化合物のガラス転移温度は第一の有機化合物のガラス転移温度よりも高い。

要件 3 : 電子輸送層 6 が第一の有機化合物のみで形成される有機 E L 素子 1 0 を第一の有機 E L 素子とし、電子輸送層 6 が第二の有機化合物のみで形成される有機 E L 素子 1 0 を第二の有機 E L 素子とした場合、第二の有機 E L 素子の初期輝度半減期は第一の有機 E L 素子の初期輝度半減期よりも長い。

第一の有機化合物はシロール誘導体であることが好ましい。好ましいシロール誘導体は特開平09-87616号公報及び特開平09-194487号公報に記載のシロール誘導体であり、より好ましいシロール誘導体は、2, 5-ビス(6'-  
15 - (2', 2"-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ジフェニルシロール及び2, 5-ビス(6'- (2', 2"-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ビス(2-メチルフェニル)シロールである。

[illegible]

- ノリノラト) アルミニウム、トリス (5-クロロ-8-キノリノラト) アルミニウム、トリス (5-ブロモ-8-キノリノラト) アルミニウム、トリス (5, 7-ジクロロ-8-キノリノラト) アルミニウム、トリス (5-シアノ-8-キノリノラト) アルミニウム、トリス (5-スルホニル-8-キノリノラト) アルミニウム、トリス (5-プロピル-8-キノリノラト) アルミニウム、ビス (8-キノリノラト) 亜鉛、ビス (2-メチル-8-キノリノラト) 亜鉛、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラト) 亜鉛、ビス (2-メチル-5-クロロ-8-キノリノラト) 亜鉛、ビス (2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラト) 亜鉛、ビス (3, 4-ジメチル-8-キノリノラト) 亜鉛、ビス (4, 6-ジメチル-8-キノリノラト) 亜鉛、ビス (5-クロロ-8-キノリノラト) 亜鉛、ビス (5, 7-ジクロロ-8-キノリノラト) 亜鉛、ビス (ベンゾ [f] -8-キノリノラト) 亜鉛、ビス (8-キノリノラト) ベリリウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラト) ベリリウム、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラト) ベリリウム、ビス (2-メチル-5-クロロ-8-キノリノラト) ベリリウム、ビス (2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラト) ベリリウム、ビス (3, 4-ジメチル-8-キノリノラト) ベリリウム、ビス (4, 6-ジメチル-8-キノリノラト) ベリリウム、ビス (5-クロロ-8-キノリノラト) ベリリウム、ビス (4, 6-ジメチル-8-キノリノラト) ベリリウム、ビス (10-ヒドロキシベンゾ [h] キノリノラト) ベリリウム、ビス (8-キノリノラト) マグネシウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラト) マグネシウム、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラト) マグネシウム、ビス (2-メチル-5-クロロ-8-キノリノラト) マグネシウム、ビス (2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラト) マグネシウム、ビス (3, 4-ジメチル-8-キノリノラト) マグネシウム、ビス (4, 6-ジメチル-8-キノリノラト) マグネシウム、ビス (5-クロロ-8-キノリノラト) マグネシウム、ビス (5, 7-ジクロロ-8-キノリノラト) マグネシウム、ビス (10-ベンゾ [h] キノリノラト) マグネシウム、トリス (8-キノリノラト) インジウム、8-キノリノラトリチウム、トリス (5-クロロ-8-キノリノラト) ガリウム、ビス (5-クロロ-8-キノリノラト) カルシウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラト) (トリフェニルシラノラト) ア

ルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(ジフェニルメチルシラノラト)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(tert-ブチルジフェニルシラノラト)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(トリス-(4,4-ビフェニル)シラノラト)ガリウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(1-ナフトラト)ガリウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(2-ナフトラト)ガリウム、及びビス(8-キノリノラト)銅等のキノリノラト系金属錯体である。

電子輸送層6が第一及び第二の有機化合物以外の第三の有機化合物を含有する場合には、その第三の有機化合物もまた上記の要件1~3のうち要件1を含む少なくとも二つの要件を満たすことが好ましい。第三の有機化合物の例としては、シロール誘導体、キノリノラト系金属錯体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、フェナントロリン誘導体、キノキサリン誘導体、キノリン誘導体、ピロール誘導体、ベンゾピロール誘導体、ピラゾール誘導体、チアゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、チアジアゾール誘導体、チオナフテン誘導体、イミダゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、トリアゾール誘導体、ジスチリルベンゼン誘導体、及びスピロ化合物が挙げられる。キノリノラト系金属錯体は、配位子として8-キノリノラト、2-メチル-8-キノリノラト、4-メチル-8-キノリノラト、5-メチル-8-キノリノラト、3,4-ジメチル-8-キノリノラト、4-エチル-8-キノリノラト、4,5-ジメチル-8-キノリノラト、4,6-ジメチル-8-キノリノラト、4-メトキシ-8-キノリノラト、10-ベンゾ[h]キノリノラト、ベンゾ[f]-8-キノリノラト、8-キノリノラトの2量体、又は7-プロピル-8-キノリノラトを持ち、尚かつ中心金属としてアルミニウム、ベリリウム、亜鉛、マグネシウム、ガリウム、インジウム、銅、カルシウム、錫、又は鉛を持つことが好ましい。

電子輸送層6に占める第一の有機化合物の重量割合は、好ましくは1%以上かつ50%以下である。第一の有機化合物は、400以上の分子量を有することが好ましい。第一の有機化合物の重量割合が1%以上かつ50%以下である場合、

並びに第一の有機化合物が400以上の分子量を有する場合には、有機EL素子10の初期輝度半減期が延長し尚かつ発光効率が向上する。

電子輸送層6は、第一の有機化合物と第二の有機化合物とが共蒸着されること  
5 によって形成されてもよいし、あるいは第一の有機化合物からなる第一の層と第二の有機化合物からなる第二の層とが積層されることによって形成されてもよい。電子輸送層6が共蒸着により形成される場合、電子輸送層6中の第一及び第二の有機化合物の各濃度は電子輸送層6の厚み方向において均一であってもよいし、不均一であってもよい。電子輸送層6が積層により形成される場合、第一の層の  
10 上に第二の層が設けられてもよいし、あるいは第二の層の上に第一の層が設けられてもよい。

電子輸送層6の厚みは、好ましくは5～100nmであり、より好ましくは5～50nmである。電子輸送層6は、真空蒸着法などの公知の方法によって形成  
15 される。電子輸送層6は、発光機能等の電子輸送機能以外の機能を有してもよい。

陰極7は電子輸送層6に電子を注入する役割を有する。陰極7を形成する材料は金属、合金、電気伝導性化合物及びそれらの混合物のいずれであってもよい。陰極7を形成する材料は、低い電気抵抗及び小さい仕事関数を有することが望ましい。  
20 陰極7を形成する好ましい材料の例としては、金、銀、銅、アルミニウム、インジウム、カルシウム、スズ等の金属；アルミニウム－カルシウム合金及びアルミニウム－リチウム合金をはじめとするアルミニウム合金、マグネシウム－銀合金及びマグネシウム－インジウム合金をはじめとするマグネシウム合金等の合金；及び陽極2を形成する材料として先に例示した材料が挙げられる。陰極7は  
25 単一種類の材料からなるものであってもよいし、複数種類の材料からなるものであってもよい。陰極7の厚さは、好ましくは5nm～1μmであり、より好ましくは10nm～500nmである。陰極7は、真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法、電子ビーム蒸着法などの公知の方法によって形成される。発光層5から発せられる光（可視光）が陰極7を通じて有機EL素子10か

ら出射される場合には、陰極 7 は可視光を透過可能である必要がある。可視光に対する陰極 7 の透過率は好ましくは 10% 以上である。

5 陰極 7 から電子輸送層 6 への電子注入特性を向上させるべく、あるいは陰極 7 と電子輸送層 6 との密着性を向上させるべく、陰極 7 と電子輸送層 6 との間には陰極界面層が設けられてもよい。陰極界面層を形成する材料の例としては、フッ化リチウム、酸化リチウム、フッ化マグネシウム、フッ化カルシウム、フッ化ストロンチウム、フッ化バリウム等のアルカリ金属及びアルカリ土類金属のフッ化物、酸化物、塩化物及び硫化物が挙げられる。陰極界面層は、単一種類の材料か  
10 ら形成されてもよいし、複数種類の材料から形成されてもよい。陰極界面層の厚みは、好ましくは 0.1 nm ~ 10 nm であり、より好ましくは 0.3 nm ~ 3 nm である。陰極界面層は、厚みが均一であってもよいし、不均一であってもよい。陰極界面層はまた、島状であってもよい。陰極界面層は真空蒸着法などの公知の方法によって形成される。

15

陰極界面層は、電子輸送層 6 を形成する材料として先に例示した材料と、陰極 7 を形成する材料として先に例示した材料とが共蒸着されることによって形成されてもよい。

20 発光層 5 と電子輸送層 6 との間にはホールブロック層が設けられてもよい。ホールブロック層は、ホールの通過をブロックすることにより、陽極 2 から発光層 5 まで注入及び輸送されたホールの一部が電子と再結合することなく電子輸送層 6 にまで達するのを防止する。これにより有機 EL 素子の発光効率の低下は抑制される。ホールブロック層を形成する材料は、発光層 5 を形成する材料のイオン  
25 化ポテンシャルよりも大きいイオン化ポテンシャルを有することが望ましい。ホールブロック層を形成する材料の例としては、電子輸送層 6 を形成する材料として先に例示した材料のうちで発光層 5 を形成する材料のイオン化ポテンシャルよりも大きいイオン化ポテンシャルを有する材料が挙げられる。ホールブロック層を形成する材料のイオン化ポテンシャルは、発光層 5 を形成する材料のイオン化

ポテンシャルよりも0.1 eV以上大きいことが好ましい。この場合、ホールブロック層がホールの通過を効果的にブロックする。ホールブロック層は単一の層で構成されてもよいし、複数の層で構成されてもよい。ホールブロック層はまた、単一種類の材料から形成されてもよいし、複数種類の材料から形成されてもよい。

5    ホールブロック層の厚みは、好ましくは0.5～50 nmであり、より好ましくは1～10 nmである。ホールブロック層は、真空蒸着法などの公知の方法によって形成される。

基板1上に設けられる陽極2、有機層8及び陰極7は逆順に設けられてもよい。

10    すなわち、基板1の上に陰極7が設けられ、その陰極7の上に有機層8が設けられ、その有機層8の上に陽極2が設けられてもよい。有機層8に含まれるホール注入層3、ホール輸送層4、発光層5及び電子輸送層6は、図1の有機EL素子10の場合と同様、陽極2と対向する有機層8の側面から陰極7と対向する有機層8の側面に向かって順番に並んでいる。この場合も、ホール注入層3及びホール輸送層4は省かれてもよく、陽極2及び陰極7の少なくとも一方は透明である。

15    以上のように構成された別例の有機EL素子は、必要に応じて上述の陰極界面層又はホールブロック層を含んでもよい。

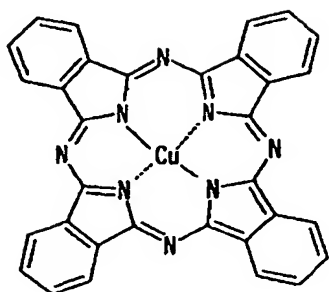
以下、実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、当然ながら本発明は実施例に限定して解釈されない。

20

#### 実施例1

実施例1では、まず、透明ガラス製の基板1の上にITO製で厚さ190 nmの陽極2が形成される。陽極2が設けられた基板1はアルカリ洗浄及び純水洗浄された後に乾燥され、さらに紫外線オゾン洗浄される。その後、下記式(1)で表される銅フタロシアニンからなる厚さ10 nmのホール注入層3が陽極2の上に真空蒸着法により設けられる。銅フタロシアニンの蒸着はカーボンるつぽにて真空度約 $5.0 \times 10^{-5}$  Paの雰囲気下で行なわれ、蒸着速度は0.1 nm/sである。

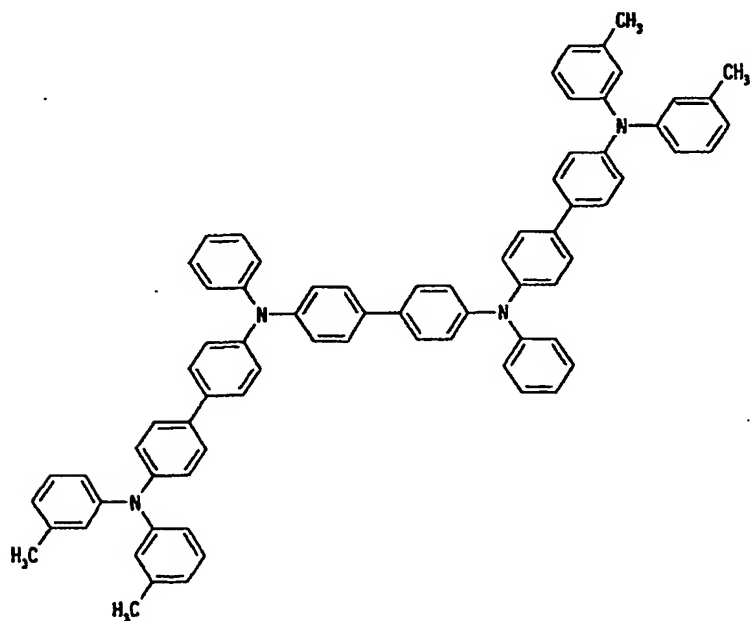
25



(1)

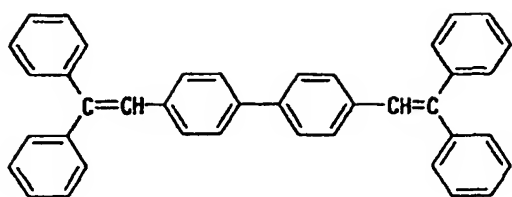
次いで、下記式 (2) で表されるトリフェニルアミンの 4 量体からなる厚さ 10 nm のホール輸送層 4 がホール注入層 3 の上に真空蒸着法により設けられる。

- 5 トリフェニルアミンの 4 量体の蒸着は、カーボンるつぼにて真空度約  $5.0 \times 10^{-5}$  Pa の雰囲気下で行なわれ、蒸着速度は  $0.1 \text{ nm/s}$  である。



(2)

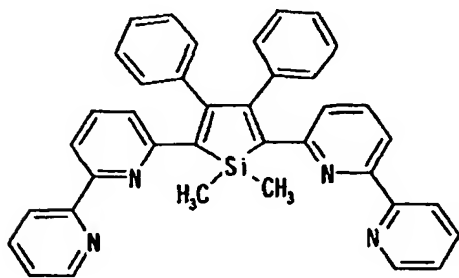
- 10 次に、発光層 5 として、下記式 (3) で表される DPVBi からなる厚さ 30 nm の発光層 5 がホール輸送層 4 の上に真空蒸着法により設けられる。DPVBi の蒸着は、真空度約  $5.0 \times 10^{-5}$  Pa で行なわれ、蒸着速度  $0.1 \text{ nm/s}$  である。なお、DPVBi からなる発光層 5 は青色光を発する。



(3)

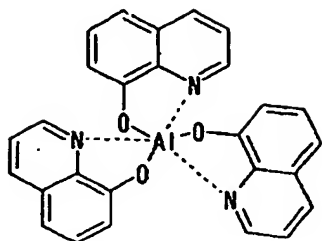
続いて、式(4)で表される第一の有機化合物としての2,5-ビス(6'-(2', 2''-ビピリジル))-1,1-ジメチル-3,4-ジフェニルシロールと、式(5)で表される第二の有機化合物としてのAlq3とが発光層5の上に真空度約5.

- 5  $0 \times 10^{-5}$  Paの雰囲気下で共蒸着され、厚さ20 nmの電子輸送層6が形成される。このとき、電子輸送層6に対する2,5-ビス(6'-(2', 2''-ビピリジル))-1,1-ジメチル-3,4-ジフェニルシロールの重量割合が1%となるように、2,5-ビス(6'-(2', 2''-ビピリジル))-1,1-ジメチル-3,4-ジフェニルシロールの蒸着速度とAlq3の蒸着速度の比率は調整され
- 10 る。ただし、2,5-ビス(6'-(2', 2''-ビピリジル))-1,1-ジメチル-3,4-ジフェニルシロールの蒸着速度とAlq3の蒸着速度との和は常に約0.1 nm/sである。なお、2,5-ビス(6'-(2', 2''-ビピリジル))-1,1-ジメチル-3,4-ジフェニルシロールは、シロール誘導体の一種であって570.8の分子量を有し、Alq3はキノリノラト系金属錯体の一種であ
- 15 る。



(4)





(5)

なお、Alq3と2,5-ビス(6'-ビピリジル)-1,1-ジメチル-3,4-ジフェニルシロールとを比較すると、示差走査熱量分析法によ  
 5 って測定されるガラス転移温度に関してはAlq3の方が高く、Time of  
 Flight (TOF) 法によって測定される実用上の電界強度下での電子移動  
 度に関しては2,5-ビス(6'-ビピリジル)-1,1-ジメチル-3,4-ジフェニルシ  
 10 ロールの方が高い。TOF法は、試料表面にパルス光を照射し、パルス光  
 によって発生したキャリアが試料内を移動することによって生じた過渡電  
 流を測定して電子移動度を測定する方法である。また、Alq3単独で形  
 成された電子輸送層6を備える有機EL素子と、2,5-ビス(6'-ビピリジ  
 15 2,5-ビス(6'-ビピリジル)-1,1-ジメチル-3,4-ジフェニルシロール単独で  
 形成された電子輸送層6を備える有機EL素子とを比較すると、Alq3単  
 独で形成された電子輸送層6を備える有機EL素子の方が初期輝度半減  
 期が長い。

電子輸送層6の形成後には、フッ化リチウムからなる厚さ0.5nmの陰極  
 界面層が電子輸送層6の上に真空蒸着法により設けられる。フッ化リチ  
 20 ウムの蒸着は、カーボンるつぼにて真空度約 $5.0 \times 10^{-5}$  Paの雰囲気下  
 で行なわれ、蒸着速度は0.03 nm/sである。

次に、アルミニウムからなる厚さ100nmの陰極7が陰極界面層の上に真  
 空蒸着法により設けられる。アルミニウムの蒸着は、タングステンボ  
 25 ートにて真空度約 $5.0 \times 10^{-5}$  Paの雰囲気下で行なわれ、蒸着速度は1.0  
 nm/sである。

以上のようにして作製された有機EL素子の初期輝度半減期および輝度  $1000 \text{ cd/m}^2$  における電力効率と電流効率とを測定した結果を表1に示す。輝度は輝度測定器（株式会社トプコンの輝度計BM7）を用いて測定した。初期輝度半減期は、初期状態の有機EL素子が  $2400 \text{ cd/m}^2$  の輝度で発光するのに必要とされる量の電流が有機EL素子に供給し続けられたときに、 $1200 \text{ cd/m}^2$  にまで輝度が低下するのに要する時間として測定した。

#### 実施例2～6

実施例2～6では、電子輸送層6に対する2, 5-ビス(6'- (2', 2''-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ジフェニルシロールの重量割合がそれぞれ10%、20%、30%、40%、50%である以外は、全て実施例1と同条件で有機EL素子が作製される。作製された各有機EL素子の初期輝度半減期及び輝度  $1000 \text{ cd/m}^2$  における電力効率と電流効率とを測定した結果を表1に示す。

#### 比較例1

比較例1では、電子輸送層6を、二種類の材料によって形成するのに代えて、Alq3のみで形成する他は、実施例1と同様にして有機EL素子が作製される。Alq3の蒸着は真空度約  $5.0 \times 10^{-5} \text{ Pa}$  の雰囲気下で  $0.1 \text{ nm/s}$  の速度で行なわれ、電子輸送層6の厚さは  $20 \text{ nm}$  である。作製された有機EL素子の初期輝度半減期および輝度  $1000 \text{ cd/m}^2$  における電力効率と電流効率とを測定した結果を表1及び表3に示す。

#### 比較例2

比較例2では、電子輸送層6に対する2, 5-ビス(6'- (2', 2''-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ジフェニルシロールの重量割合が60%である以外は、全て実施例1と同条件で有機EL素子が作製される。作製された有機EL素子の初期輝度半減期及び輝度  $1000 \text{ cd/m}^2$  における電力効率と電流効率とを測定した結果を表1に示す。

表 1

|      | 2, 5-ビス(6'-(2', 2''-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ジフェニルシロール重量割合(%) | 電力効率<br>(lm/W) | 電流効率<br>(cd/A) | 初期輝度<br>半減期<br>(hr) |
|------|---|----------------|----------------|---------------------|
| 実施例1 | 1   | 2.9            | 4.4            | 170                 |
| 実施例2 | 10  | 3.1            | 4.6            | 167                 |
| 実施例3 | 20  | 3.3            | 4.8            | 167                 |
| 実施例4 | 30  | 3.5            | 5.0            | 163                 |
| 実施例5 | 40  | 3.7            | 5.2            | 163                 |
| 実施例6 | 50  | 3.7            | 5.2            | 162                 |
| 比較例1 | 0   | 2.0            | 3.6            | 173                 |
| 比較例2 | 60  | 3.8            | 5.3            | 117                 |

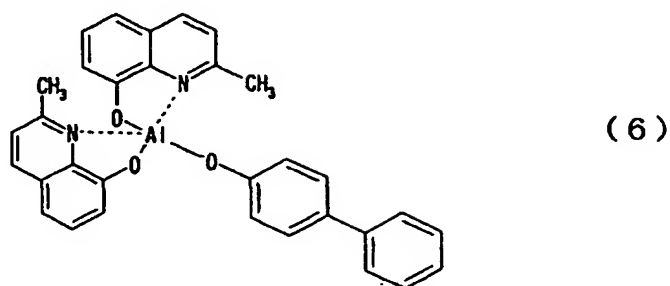
## 評価

- 5 表 1 に示すように、Alq3 と 2, 5-ビス(6'-(2', 2''-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ジフェニルシロールを共蒸着して電子輸送層 6 を形成した実施例 1 ~ 実施例 6 及び比較例 2 の有機 EL 素子は、比較例 1 の Alq3 のみで電子輸送層 6 を形成した有機 EL 素子に比べて、電力効率、電流効率とも優れる。また、実施例 1 ~ 6 及び比較例 1 の有機 EL 素子は、比較例 2 の有機
- 10 EL 素子に比べて初期輝度半減期が長い。従って、電子輸送層 6 に占める 2, 5-ビス(6'-(2', 2''-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ジフェニルシロールの重量割合が 1 % 以上 50 % 以下のときに、長い初期輝度半減期と高い発光効率とが両立されることが示唆される。

## 15 実施例 7

実施例 7 では、第二の有機化合物として Alq3 に代えて BA1q を用いるように変更した以外は、実施例 1 と同様の条件で有機 EL 素子が作製される。作製された有機 EL 素子の初期輝度半減期および輝度  $1000 \text{ cd/m}^2$  における電力効率と電流効率とを測定した結果を表 2 に示す。BA1q はキノリノラト系金

属錯体の一種であり、下記式（６）に示す構造を有する。



- 5      なお、BA1qと2,5-ビス(6'- (2', 2''-ビピリジル))-1,1'-ジメチル-3,4-ジフェニルシロールとを比較すると、ガラス転移温度に関してはBA1qの方が高く、実用上の電界強度下での電子移動度に関しては2,5-ビス(6'- (2', 2''-ビピリジル))-1,1'-ジメチル-3,4-ジフェニルシロールの方が高い。また、BA1q単独で形成された電子輸送層6を備える有機EL素子と、2,5-ビス(6'- (2', 2''-ビピリジル))-1,1'-ジメチル-3,4-ジフェニルシロール単独で形成された電子輸送層6を備える有機EL素子とを比較すると、BA1q単独で形成された電子輸送層6を備える有機EL素子の方が初期輝度半減期が長い。

#### 15      実施例8～12

- 実施例8～12では、電子輸送層6に対する2,5-ビス(6'- (2', 2''-ビピリジル))-1,1'-ジメチル-3,4-ジフェニルシロールの重量割合がそれぞれ10%、20%、30%、40%、50%である以外は、全て実施例7と同条件で有機EL素子が作製される。作製された有機EL素子の初期輝度半減期及び輝度1000 cd/m<sup>2</sup>における電力効率と電流効率とを測定した結果を表2に示す。

#### 比較例3

比較例3では、電子輸送層6を、二種類の材料によって形成するのに代えて、

B A 1 q のみで形成する他は、実施例 1 と同様にして有機 E L 素子が作製される。なお、B A 1 q の蒸着速度は  $0.1 \text{ nm/s}$  であり、電子輸送層 6 の厚さは  $20 \text{ nm}$  である。作製された有機 E L 素子の初期輝度半減期および輝度  $1000 \text{ cd/m}^2$  における電力効率と電流効率とを測定した結果を表 2 及び表 4 に示す。

5

#### 比較例 4

比較例 4 では、電子輸送層 6 に対する 2, 5-ビス (6'- (2', 2''-ビピリジル)) -1, 1-ジメチル-3, 4-ジフェニルシロールの重量割合が 60% である以外は、全て実施例 7 と同条件で有機 E L 素子が作製される。作製された有機 E L 素子の初期輝度半減期及び輝度  $1000 \text{ cd/m}^2$  における電力効率と電流効率とを測定した結果を表 2 に示す。

表 2

|        | 2, 5-ビス(6'- (2', 2''-ビピリジル)) -1, 1-ジメチル-3, 4-ジフェニルシロール重量割合 (%) | 電力効率 (lm/W) | 電流効率 (cd/A) | 初期輝度半減期 (hr) |
|--------|--|-------------|-------------|--------------|
| 実施例 7  | 1  | 2.5         | 4.3         | 159          |
| 実施例 8  | 10   | 2.9         | 4.4         | 158          |
| 実施例 9  | 20   | 3.1         | 4.6         | 158          |
| 実施例 10 | 30   | 3.3         | 4.9         | 157          |
| 実施例 11 | 40   | 3.6         | 5.2         | 155          |
| 実施例 12 | 50   | 3.7         | 5.5         | 155          |
| 比較例 3  | 0  | 1.5         | 3.5         | 160          |
| 比較例 4  | 60   | 3.8         | 5.6         | 114          |

15

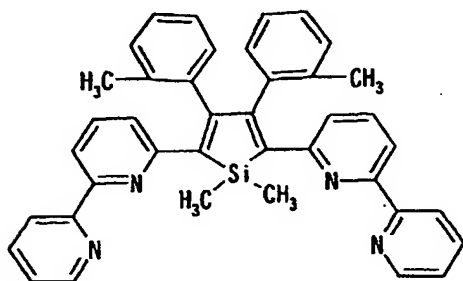
#### 評価

表 2 に示すように、B A 1 q と 2, 5-ビス (6'- (2', 2''-ビピリジル)) -1, 1-ジメチル-3, 4-ジフェニルシロールを共蒸着して電子輸送層を形

成した実施例 7～実施例 12 及び比較例 4 の有機 EL 素子は、比較例 3 の BA1q のみで電子輸送層 6 を形成した有機 EL 素子に比べて、電力効率、電流効率とも優れる。また、実施例 7～実施例 12 及び比較例 3 の有機 EL 素子は、比較例 4 の有機 EL 素子に比べて初期輝度半減期が長い。従って、電子輸送層 6 に占める 2, 5-ビス (6'- (2', 2''-ビピリジル)) -1, 1-ジメチル-3, 4-ジフェニルシロールの重量割合が 1%以上 50%以下のときに、長い初期輝度半減期と高い発光効率とが両立されることが示唆される。

### 実施例 13

10 実施例 13 では、第一の有機化合物として 2, 5-ビス (6'- (2', 2''-ビピリジル)) -1, 1-ジメチル-3, 4-ジフェニルシロールに代えて 2, 5-ビス (6'- (2', 2''-ビピリジル)) -1, 1-ジメチル-3, 4-ビス (2-メチルフェニル) シロールを用いるように変更した以外は、実施例 1 と同様の条件で有機 EL 素子が作製される。作製された有機 EL 素子の初期輝度半減期および輝度 1000 cd/m<sup>2</sup> における電力効率と電流効率とを測定した結果を表 3 に示す。2, 5-ビス (6'- (2', 2''-ビピリジル)) -1, 1-ジメチル-3, 4-ビス (2-メチルフェニル) シロールはシロール誘導体の一種であり、下記式 (7) に示す構造を有し、598.8 の分子量を有する。



(7)

20 なお、A1q3 と 2, 5-ビス (6'- (2', 2''-ビピリジル)) -1, 1-ジメチル-3, 4-ビス (2-メチルフェニル) シロールとを比較すると、ガラス転移温度に関しては A1q3 の方が高く、実用上の電界強度下で電子移動度に関

しては2, 5-ビス(6'- (2', 2"-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ビス(2-メチルフェニル)シロールの方が高い。また、Alq3単独で形成された電子輸送層6を備える有機EL素子と、2, 5-ビス(6'- (2', 2"-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ビス(2-メチルフェニル)シロール単独で形成された電子輸送層6を備える有機素子とを比較すると、Alq3単独で形成された電子輸送層6を備える有機EL素子の方が初期輝度半減期が長い。

#### 実施例14～18

10 実施例14～18では、電子輸送層6に対する2, 5-ビス(6'- (2', 2"-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ビス(2-メチルフェニル)シロールの重量割合がそれぞれ10%、20%、30%、40%、50%である以外は、全て実施例13と同条件で有機EL素子が作製される。作製された有機EL素子の初期輝度半減期及び輝度1000 cd/m<sup>2</sup>における電力効率と電流効率  
15 とを測定した結果を表3に示す。

#### 比較例5

比較例5では、電子輸送層6に対する2, 5-ビス(6'- (2', 2"-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ビス(2-メチルフェニル)シロールの重量割合が60%である以外は、全て実施例13と同条件で有機EL素子が作製される。作製された有機EL素子の初期輝度半減期及び輝度1000 cd/m<sup>2</sup>における電力効率と電流効率とを測定した結果を表3に示す。

表 3

|       | 2, 5-ビス(6'-(2', 2"-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ビス(2-メチルフェニル)シロール重量割合(%) | 電力効率<br>(lm/W) | 電流効率<br>(cd/A) | 初期輝度<br>半減期<br>(hr) |
|-------|--|----------------|----------------|---------------------|
| 実施例13 | 1  | 3.1            | 4.6            | 171                 |
| 実施例14 | 10   | 3.3            | 4.9            | 170                 |
| 実施例15 | 20   | 3.8            | 5.2            | 169                 |
| 実施例16 | 30   | 4.3            | 5.5            | 166                 |
| 実施例17 | 40   | 4.5            | 5.7            | 165                 |
| 実施例18 | 50   | 4.5            | 5.8            | 165                 |
| 比較例1  | 0  | 2              | 3.6            | 172                 |
| 比較例5  | 60   | 4.5            | 5.9            | 119                 |

## 評価

- 5 表3に示すように、A1q3と2, 5-ビス(6'-(2', 2"-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ビス(2-メチルフェニル)シロールを共蒸着して電子輸送層を形成した実施例13～実施例18及び比較例5の素子は、比較例1のA1q3のみで電子輸送層6を形成した素子に比べて、電力効率、電流効率とも優れる。また、実施例13～実施例18及び比較例1の有機EL素子は、比較例5の有機EL素子に比べて初期輝度半減期が長い。従って、電子輸送層6に占める2, 5-ビス(6'-(2', 2"-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ビス(2-メチルフェニル)シロールの重量割合が1%以上50%以下のときに、長い初期輝度半減期と高い発光効率とが両立されることが示唆される。

## 15 実施例19

実施例19では、第二の有機化合物としてA1q3に代えてBA1qを用いるように変更した以外は、実施例13と同様の条件で有機EL素子が作製される。作製された有機EL素子の初期輝度半減期および輝度1000cd/m<sup>2</sup>におけ



る電力効率と電流効率とを測定した結果を表4に示す。

5       なお、BA1qと2, 5-ビス(6'- (2', 2''-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ビス(2-メチルフェニル)シロールとを比較すると、ガラス  
10     転移温度に関してはBA1qの方が高く、実用上の電界強度下で電子移動度に関  
      しては2, 5-ビス(6'- (2', 2''-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ビス(2-メチルフェニル)シロールの方が高い。また、BA1q単独で形  
      成された電子輸送層6を備える有機EL素子と、2, 5-ビス(6'- (2', 2''-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ビス(2-メチルフェニル)シ  
      ロール単独で形成された電子輸送層6を備える有機EL素子とを比較すると、BA  
      1q単独で形成された電子輸送層6を備える有機EL素子の方が初期輝度半減期  
      が長い。

#### 実施例20～24

15     実施例20～24では、電子輸送層6に対する2, 5-ビス(6'- (2', 2''-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ビス(2-メチルフェニル)シ  
      ロールの重量割合がそれぞれ10%、20%、30%、40%、50%である以外  
      は、全て実施例19と同条件で有機EL素子が作製される。作製された有機EL  
      素子の初期輝度半減期及び輝度1000cd/m<sup>2</sup>における電力効率と電流効率  
20     とを測定した結果を表4に示す。

#### 比較例6

25     比較例6では、電子輸送層6に対する2, 5-ビス(6'- (2', 2''-ビピリ  
      ジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ビス(2-メチルフェニル)シロールの重  
      量割合が60%である以外は、全て実施例19と同条件で有機EL素子が作製さ  
      れる。作製された有機EL素子の初期輝度半減期及び輝度1000cd/m<sup>2</sup>に  
      おける電力効率と電流効率とを測定した結果を表4に示す。

表 4

|       | 2, 5-ビス(6'-(2', 2"-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ビス(2-メチルフェニル)シロール重量割合(%) | 電力効率<br>(lm/W) | 電流効率<br>(cd/A) | 初期輝度<br>半減期<br>(hr) |
|-------|--|----------------|----------------|---------------------|
| 実施例19 | 1  | 2.8            | 4.6            | 160                 |
| 実施例20 | 10   | 2.9            | 4.6            | 158                 |
| 実施例21 | 20   | 3.3            | 4.8            | 158                 |
| 実施例22 | 30   | 3.9            | 5.2            | 155                 |
| 実施例23 | 40   | 3.9            | 5.5            | 153                 |
| 実施例24 | 50   | 4.2            | 5.7            | 153                 |
| 比較例3  | 0  | 1.5            | 3.5            | 160                 |
| 比較例6  | 60   | 4.2            | 5.9            | 123                 |

## 評価

- 5 表4に示すように、BA1qと2, 5-ビス(6'-(2', 2"-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ビス(2-メチルフェニル)シロールを共蒸着して電子輸送層6を形成した実施例19～実施例24及び比較例6の有機EL素子は、比較例3のBA1qのみで電子輸送層6を形成した有機EL素子に比べて、電力効率、電流効率とも優れる。また、実施例19～実施例24及び比較例3の
- 10 有機EL素子は、比較例6の有機EL素子に比べて、初期輝度半減期が長い。従って、電子輸送層6に占める2, 5-ビス(6'-(2', 2"-ビピリジル))-1, 1-ジメチル-3, 4-ビス(2-メチルフェニル)シロールの重量割合が1%以上50%以下のときに、長い初期輝度半減期と高い発光効率とが両立されることが示唆される。

## 請求の範囲

1. 一対の電極と、その一対の電極の間に設けられた電子輸送層を含む複数の有機化合物含有層とを備えた有機電界発光素子であって、

5 電子輸送層は、第一の有機化合物及び第二の有機化合物を少なくとも含有し、

第一の有機化合物は、第二の有機化合物の電子移動度よりも高い電子移動度を有し、

10 第二の有機化合物は、第一の有機化合物のガラス転移温度よりも高いガラス転移温度を有することを特徴とする有機電界発光素子。

2. 一対の電極と、その一対の電極の間に設けられた電子輸送層を含む複数の有機化合物含有層とを備えた有機電界発光素子であって、

15 電子輸送層は、第一の有機化合物及び第二の有機化合物を少なくとも含有し、

第一の有機化合物は、第二の有機化合物の電子移動度よりも高い電子移動度を有し、

20 電子輸送層が第一の有機化合物のみから形成される有機電界発光素子を第一の有機電界発光素子とし、電子輸送層が第二の有機化合物のみから形成される有機電界発光素子を第二の有機電界発光素子とした場合、第二の有機電界発光素子の初期輝度半減期が第一の有機電界発光素子の初期輝度半減期よりも長くなるように第一及び第二の有機化合物が選択されていることを特徴とする有機電界発光素子。

25

3. 請求の範囲第1項又は第2項に記載の有機電界発光素子において、第一の有機化合物がシロール誘導体であることを特徴とする有機電界発光素子。

4. 請求の範囲第1項～第3項のいずれか一項に記載の有機電界発光素子にお

いて、第一の有機化合物が400以上の分子量を有することを特徴とする有機電界発光素子。

5. 請求の範囲第1項～第4項のいずれか一項に記載の有機電界発光素子において、第二の有機化合物が金属錯体であることを特徴とする有機電界発光素子。

6. 請求の範囲第5項に記載の有機電界発光素子において、前記金属錯体がキノリノラト系金属錯体であることを特徴とする有機電界発光素子。

10 7. 請求の範囲第1項～第6項のいずれか一項に記載の有機電界発光素子において、電子輸送層に占める第一の有機化合物の重量割合が1%以上かつ50%以下であることを特徴とする有機電界発光素子。

15 8. 請求の範囲第1項～第7項のいずれか一項に記載の有機電界発光素子において、第一及び第二の有機化合物が電子輸送層中に混在していることを特徴とする有機電界発光素子。

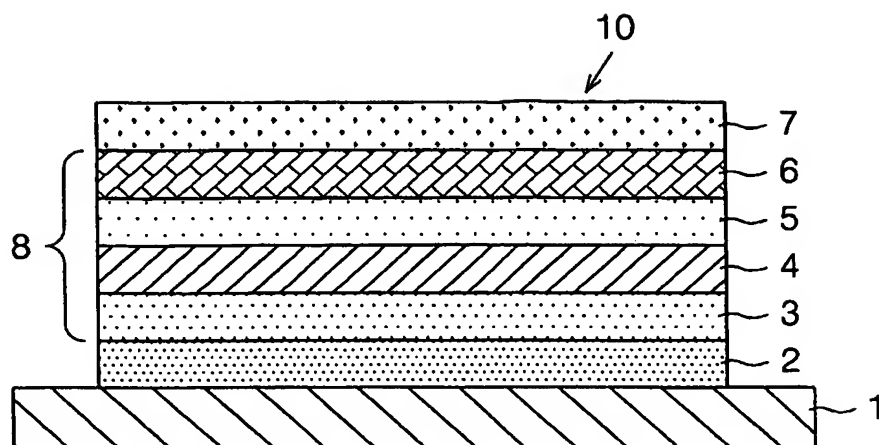
9. 請求の範囲第8項に記載の有機電界発光素子において、第一及び第二の有機化合物が共蒸着されることによって電子輸送層が形成されていることを特徴とする有機電界発光素子。

20 10. 請求の範囲第1項～第7項のいずれか一項に記載の有機電界発光素子において、第一の有機化合物からなる第一の層及び第二の有機化合物からなる第二の層を電子輸送層が含むことを特徴とする有機電界発光素子。

25

11. 請求の範囲第1項～第10項のいずれか一項に記載の有機電界発光素子において、電子輸送層が5～100nmの厚みを有することを特徴とする有機電界発光素子。

12. 請求の範囲第1項～第11項のいずれか一項に記載の有機電界発光素子において、一対の電極の間には有機化合物含有層としてホール注入層、ホール輸送層及び発光層がさらに設けられていることを特徴とする有機電界発光素子。

**Fig.1**

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.  
PCT/JP03/14108

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl<sup>7</sup> H05B33/22, H05B33/14, C09K11/06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
Int.Cl<sup>7</sup> H05B33/00-28

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2003  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2003 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages  | Relevant to claim No. |
|-----------|---|-----------------------|
| Y         | M. Uchida, 'Structural Optimization of 2.5-Diarylsiloles as Excellent Electron-Transporting Materials for Organic Electroluminescent Devices', Chem.Mater., 2001, Vol.13, p.2680-3., abstract, introduction | 1-12                  |
| Y         | JP 9-188874 A (TDK Corp.),<br>22 July, 1997 (22.07.97),<br>Par. No. [0012]<br>(Family: none)  | 1-12                  |
| Y         | JP 2000-196140 A (Sharp Corp.),<br>14 July, 2000 (14.07.00),<br>Par. Nos. [0035] to [0038]; Fig. 5<br>(Family: none)  | 1-12                  |

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

|   |  |
|---|--|
| * Special categories of cited documents:  | "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  |
| "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  | "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone   |
| "E" earlier document but published on or after the international filing date  | "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art |
| "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) | "&" document member of the same patent family  |
| "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  |  |
| "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed  |  |

Date of the actual completion of the international search  
02 April, 2004 (02.04.04)

Date of mailing of the international search report  
20 April, 2004 (20.04.04)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/14108

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category*  | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages  | Relevant to claim No. |
|------------|---|-----------------------|
| E,X<br>E,Y | JP 2004-63209 A (Matsushita Electric Works, Ltd.),<br>26 February, 2004 (26.02.04),<br>Claim 10; Par. Nos. [0047] to [0051]; Fig. 2<br>(Family: none) | 1-7, 10-12<br>8, 9    |
| P,Y        | JP 2003-86381 A (Toray Industries, Inc.),<br>20 March, 2003 (20.03.03),<br>Par. Nos. [0009] to [0011], [0016] to [0017]<br>(Family: none)             | 1-12                  |
| P,Y        | Manabu UCHIDA, "Koseino Denshi Yuso Zairyo no Kaihatsu", Gekkan Display, Vol.9, No.9, 01<br>September, 2003 (01.09.03), pages 23 to 24                | 1-12                  |



## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H05B33/22, H05B33/14, C09K11/06

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H05B33/00-28

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2003年

日本国登録実用新案公報 1994-2003年

日本国実用新案登録公報 1996-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

| 引用文献の<br>カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示  | 関連する<br>請求の範囲の番号 |
|-----------------|--|------------------|
| Y               | M. Uchida, 'Structural Optimiation of 2.5-Diarylsiloles as Excellent Electron-Transporting Materials for Organic Electrolu minescent Devices', Chem. Mater., 2001, Vol. 13, p. 2680-3., abstract, introduction | 1-12             |
| Y               | J P 9-188874 A (ティーディーケイ株式会社) 1997. 07. 22, 段落【0012】 (ファミリーなし)   | 1-12             |

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

02. 04. 04

国際調査報告の発送日

20. 4. 2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

里村 利光

2 V

9 3 1 4

電話番号 03-3581-1101 内線 3271



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☒ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**